DIALOG(R)File 352:Derwent WPI

(c) 2004 Thomson Derwent. All rts. reserv.

012371324 **Image available** WPI Acc No: 1999-177431/199915

XRAM Acc No: C99-051708 XRPX Acc No: N99-130945

Organo-electroluminescent device - has an organic thin film containing a carbonyl hydroxylamine between anode and cathode electrodes

Patent Assignee: NEC CORP (NIDE)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 002

Patent Family:

Patent No Kind Date Applicat No Kind Date Week JP 11031588 19990202 JP 97186582 Α Α 19970711 199915 B JP 2998708 B2 20000111 JP 97186582 Α 19970711 200007

Priority Applications (No Type Date): JP 97186582 A 19970711

Patent Details:

Patent No Kind Lan Pg Main IPC Filing Notes

JP 11031588 A 11 H05B-033/22

JP 2998708 B2 11 H05B-033/22 Previous Publ. patent JP 11031588

Abstract (Basic): JP 11031588 A

An organo-electroluminescent device has an organic thin film(s) containing a luminescent layer between an anode and a cathode. At least one layer of the organic thin film contains a carbonyl hydroxyl amine compound of formula (I) or its mixture.

Formula (1-(I))-P

M = an n-valent metal ion; R1-R2 = (un)substituted alkyl groups, (un)substituted alkenyl groups, (un)substituted cycloalkyl groups, (un)substituted aromatic hydrocarbon groups, (un)substituted aromatic heterocyclic groups, or (un)substituted aralkyl groups; n = 1, 2, or 3.

USE - The organo-electroluminescent device is used in a plane light source, or a display device.

ADVANTAGE - The organo-electroluminescent device generates light having high brightness.

Dwg.0/4

Title Terms: ORGANO; ELECTROLUMINESCENT; DEVICE; ORGANIC; THIN; FILM; CONTAIN; CARBONYL; HYDROXYLAMINE; ANODE; CATHODE; ELECTRODE

Derwent Class: E12; L03; X26

International Patent Class (Main): H05B-033/22 International Patent Class (Additional): C09K-011/06

File Segment: CPI; EPI

DIALOG(R)File 347:JAPIO (c) 2004 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

06090072 **Image available**
ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

PUB. NO.: **11-031588** [JP 11031588 A] PUBLISHED: February 02, 1999 (19990202)

INVENTOR(s): AZUMAGUCHI TATSU

ODA ATSUSHI

ISHIKAWA HITOSHI

APPLICANT(s): NEC CORP

APPL. NO.: 09-186582 [JP 97186582]

FILED: July 11, 1997 (19970711)

INTL CLASS: H05B-033/22; C09K-011/06

ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain large luminescence luminance and superior stability by containing a carbonylhydroxylamine compound of a specific structure, singly or as a mixture in one layer containing luminescence layer between a negative electrode and a positive electrode, or at least one layer of plural layer-existing organic thin film layers. SOLUTION: A carbonylhydroxylamine compound has a structure of a formula. In the formula, M represents an (n) valence metal ion, R1, R2 respectively independently expresses a substitution or non-substitution alkyl group, a group, a substituted or alkenyl non-substitution substitution or cycloalkyl group, a substitution or non-substitution non-substituted aromatic hydrocarbon group, a substitution or non-substitution aromatic heterocyclic group, or a substitution or non-substitution aralkyl group. (n) represents any of one, two, or three. An organic thin-film layer has at least a positive hole transporting layer or an electron-transporting layer, and also the layer preferably contains a compound expressed by the formula singly or as a mixture.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

(11)特許出願公開番号

特開平11-31588

(43)公開日 平成11年(1999)2月2日

(51) Int. Cl. 6

識別記号

FΙ

H05B 33/22 C09K 11/06

H05B 33/22

C09K 11/06

Z

審査請求 有 請求項の数3 OL (全11頁)

(21)出願番号

特願平9-186582

(71)出願人 000004237

日本電気株式会社

(22)出願日

平成9年(1997)7月11日

東京都港区芝五丁目7番1号

(72)発明者 東口 達

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株

式会社内

(72)発明者 小田 敦

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株

式会社内

(72)発明者 石川 仁志

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株

式会社内

(74)代理人 弁理士 若林 忠 (外4名)

(54) 【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【要約】

【課題】 高輝度な有機EL素子を提供する。

【解決手段】 有機EL素子の構成材料として、下記一般式(1)(式中、Mはn価の金属イオンを表す。 R , R' はそれぞれ独立に置換または無置換のアルキル基、置換または無置換のアルケニル基、置換または無置換のシクロアルキル基、置換または無置換の方香族複素環基、置換または無置換のアラルキル基を表す。 nは1~3のいずれか。)で表される特定のカルボニルヒドロキシルアミン金属錯体化合物を用いる。

【化1】

$$\begin{pmatrix}
R^1 & O \\
R^2 & O
\end{pmatrix}_{n} (1)$$

【特許請求の範囲】

【請求項1】 陰極と陽極の間に発光層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機薄膜層の少なくとも一層に、一般式(1):

1

【化1】

$$\begin{pmatrix}
R^1 & O \\
R^2 & N \\
0 & n
\end{pmatrix}$$
(1)

(式中Mはn価の金属イオンを表す。R', R'はそれぞれ独立に置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、または置換もしくは無置換のアラルキル基を表す。nは1,2または3のいずれかを表す。)で示されるカルボニルヒドロ20キシルアミン化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 前記有機薄膜層として、少なくとも正孔 輸送層を有し、この層が一般式(1)で表される化合物 を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする請求 項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記有機薄膜層として、少なくとも電子 輸送層を有し、この層が一般式(1)で表される化合物 を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする請求 項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は平面光源や表示素子に利用される有機エレクトロルミネッセンス素子 (Electroluminescence素子;以下、EL素子という。) に関するものである。

[0002]

【従来の技術】EL素子は自発光型の平面型表示素子としての用途が有望視されている。中でも有機物質を用いた有機EL素子は、無機EL素子のような、交流駆動で 40かつ高電圧が必要といった制約がなく、また有機化合物の多様性により、多色化が容易であると考えられることから、盛んに開発が行われている。

【0003】しかし、従来の有機EL素子は、無機EL素子に比べて発光輝度が低く、特性劣化が著しかったため、実用化には至っていなかった。近年、10V以下の低電圧で発光する高い発光効率をもった、有機化合物の薄膜積層型の有機EL素子が報告され、関心を集めている(アプライド・フィジックス・レターズ、51巻、913頁、1987年参照)。

【0004】この方法では、金属キレート錯体を蛍光体 薄膜層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して、高輝 度の緑色発光を得ており、6~7Vの直流電圧で輝度は 数100cd/m'、最大発光効率は1.51 1m/ Wを達成して、実用領域に近い性能をもっている。

【発明が解決しようとする課題】現在までの有機EL素子はその構成、材料の改善により発光輝度は改良されているが、未だ十分な発光輝度には達していない。また、素子の寿命に関しても同様で、実用に十分な安定性を有するものはまだ得られていない。したがって、より大きな発光輝度と優れた使用時安定性を併せもつ、有機EL素子の開発が望まれているのが現状である。

【0006】本発明は、発光輝度が大きく、使用時の安定性に優れた有機EL素子を提供することを目的とするものである。

[0007]

[0005]

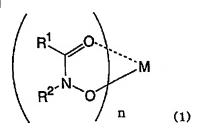
【課題を解決するための手段】本発明者らは、発光輝度が大きく、使用時の安定性に優れた有機EL素子の構成を見出すべく鋭意検討を重ねた結果、特定の化合物を有機EL素子に含有させることにより、これらの要件を満たした有機EL素子が得られることを見出した。

[0008] すなわち本発明は、陰極と陽極の間に発光層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機薄膜層の少なくとも一層に、一般式(1):

[0009]

【化2】

30



(式中Mはn価の金属イオンを表す。 R', R'はそれぞれ独立に置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換の方香族炭化水素 12 とは無置換の方香族炭化水素 14 を表す。 14 を表す。 15 で示されるカルボニルヒドとは 16 では 16 でまされるカルボニルヒドとを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。 「10010」また、本発明は、前記有機薄膜層として、 少なくとも正孔輸送層を有し、この層が一般式 (1)で表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。 「10011」また、本発明は、前記有機薄膜層として、 少なくとも電子輸送層を有し、この層が一般式 (1)で

表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。 【0012】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、有機薄膜層の少なくとも一層に前記一般式(1)で示されるカルボニルヒドロキシルアミン化合物を含むことにより、発光輝度が大きく、使用時の安定性に優れた有機EL素子となる。

[0013]

【発明の実施の形態】本発明の実施の形態で用いられる一般式(1)で示されるカルボニルヒドロキシルアミン 10 化合物において、基R', R'の好ましい例を次記する。

【0014】R', R'が置換もしくは無置換のアルキ ル基である場合、その好適な例としてメチル基、エチル 基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-プチル基、イソブチル基、t-プチル基、n-ペンチル 基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル 基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2 ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソプチル基、 1, 2-ジヒドロキシエチル基、, 1, 3-ジヒドロキ 20 シイソプロピル基、2、3-ジヒドロキシーt-ブチル 基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメ チル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2 -クロロイソプチル基、1,2-ジクロロエチル基、 1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロー t-プチル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、ブ ロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル 基、2-プロモイソプチル基、1、2-ジプロモエチル 基、1、3-ジプロモイソプロピル基、2、3-ジプロ モ t ープチル基、1, 2, 3 - トリプロモプロピル基、 ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチ ル基、2-ヨードイソプチル基、1、2-ジョードエチ ル基、1,3-ジョードイソプロピル基、2,3-ジョ ード t ープチル基、1, 2, 3 ートリヨードプロピル 基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノ エチル基、2-アミノイソプチル基、1,2-ジアミノ エチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノtープチル基、1,2,3-トリアミノプロピ ル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シア ノエチル基、2-シアノイソプチル基、1,2-ジシア 40 ノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3 ージシアノtープチル基、1,2,3-トリシアノプロ ピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニ トロエチル基、2-ニトロイソプチル基、1,2-ジニ トロエチル基、1,3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロt-プチル基、1,2,3-トリニトロプ ロピル基などの、1ないし3個の、水酸基、塩素原子、 臭素原子、沃素原子、アミノ基、シアノ基、またはニト **口基で置換された、もしくは無置換の、炭素原子数1な** いし8のアルキル基を挙げることができる。

【0015】R', R'が置換もしくは無置換のアルケニル基である場合の好適な例としては、ビニル基、アリル基、1ープテニル基、2ープテニル基、3ープテニル基、1,3ープタンジエニル基、1ーメチルビニル基、スチリル基、2,2ージフェニルビニル基、1,2ージフェニルビニル基、1ーメチルアリル基、1ーンエニルアリル基、2ーフェニルアリル基、3ーフェニルアリル基、3ージフェニルアリル基、3ーフェニルアリル基、1ーフェニルアリル基、1ーフェニルアリル基、1ーフェニルー1ープテニル基、3ーフェニルー1ープテニル基などの、1ないし2個の、メチル基またはフェニル基で置換された、もしくは無置換の、炭素原子数2ないし4のアルケニル基、もしくはブタンジエニル基のように、分子内に2個以上の炭素不飽和結合を有する基を挙げることができる。

【0016】R', R'が置換もしくは無置換のシクロアルキル基である場合は、その好適な例として、シクロプロピル基、シクロプチル基、シクロペンチル基、シクロペキシル基、4-メチルシクロヘキシル基などの、メチル基で置換された、もしくは無置換の、炭素原子数3ないし6のシクロアルキル基を挙げることができる。

【0017】R', R'が置換もしくは無置換の芳香族 炭化水素基である場合は、その好適な例として、フェニ ル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリ ル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェ ナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナント リル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル 基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナ フタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-30 ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイ ル基、4-ピフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェ ニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m -ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、oートリル基、m-トリル基、p-トリル基、 p-t-プチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピ ル)フェニル基、p-スチリルフェニル基、p-ジェフ ェニルアミノフェニル基、3-メチル-2-ナフチル 基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-ア ントリル基、4'ーメチルピフェニルイル基、4"ー t ープチルーp-ターフェニルー4-イル基などの、メチ ル基、t-プチル基、2-フェニルプロピル基、スチリ ル基またはジフェニルアミノ基で置換された、もしくは 無置換の、炭素原子数6ないし18の芳香族炭化水素基 を挙げることができる。

【0018】R', R'が置換もしくは無置換の芳香族複素環基である場合は、その好適な例として、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、4-ピリジ50 ニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-イ

ンドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6 ーインドリル基、7ーインドリル基、1ーイソインドリ ル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、 4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イ ソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル 基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾ フラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンジフラニ ル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、 1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル 基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニ 10 ル基、6-イソペンゾフラニル基、7-イソペンゾフラ ニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリ ル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル 基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキ ノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、 6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキ ノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル 基、6-キノキサリニル基、1-カルパゾリル基、2-カルバソリル基、3-カルバソリル基、4-カルバソリ ル基、9-カルパゾリル基、1-フェナンスリジニル 基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニ ル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジ ニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリ ジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナン スリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル 基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-ア クリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル 基、1、7-フェナンスロリン-3-イル基、1、7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロ リン-5-イル基、1,7-フェナンスロリン-6-イ 30 ル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、1,7 -フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェナンス ロリン-10-イル基、1、8-フェナンスロリン-2 -イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、 1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェ ナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン- 7 - イル 基、1、8-フェナンスロリン-9-イル基、1、8-フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナンス イル基、1,9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナン スロリン-6-イル基、1、9-フェナンスロリン-7 -イル基、1,9-フェナンスロリン-8-イル基、 1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フェナンス ロリン-3-イル基、1,10-フェナンスロリン-4 -イル基、1,10-フェナンスロリン-5-イル基、 2, 9-フェナンスロロン-1-イル基、2, 9-フェ ナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン 50 ルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナ

- 4 - イル基、2,9 - フェナンスロリン - 5 - イル 基、2,9-フェナンスロリン-6-イル基、2,9-フェナンスロリンー7ーイル基、2、9-フェナンスロ リン-8-イル基、2、9-フェナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナン スロリン-4-イル基、2,8-フェナンスロリン-5 - イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、 2,8-フェナンスロリン-7-イル基、2,8-フェ ナンスロリン-9-イル基、2,8-フェナンスロリン - 10-イル基、2,7-フェナンスロリン-1-イル 基、2、7-フェナンスロリン-3-イル基、2、7-フェナンスロリン-4-イル基、2,7-フェナンスロ リン-5-イル基、2,7-フェナンスロリン-6-イ ル基、2,7-フェナンスロリン-8-イル基、2,7 -フェナンスロリン-9-イル基、2,7-フェナンス ロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェ ナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチア ジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジ 20 二ル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジ ニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニ ル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニ ル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサ ジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3 ーチエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4 - イル基、2 - メチルピロール5 - イル基、3 - メチル ピロールー1ーイル基、3ーメチルピロールー2ーイル 基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロ ール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル 基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル 基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メ チル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリ ル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチ ル 3 ーインドリル基、4 - t - プチル 3 - インドリル基 などの、ヘテロ原子として1ないし2個の窒素原子、1 個の酸素原子および/または1個の硫黄原子を環中に含 み、メチル基、 t ープチル基または 2 ーフェニルプロピ ル基で置換された、もしくは無置換の、炭素原子数2な いし13の芳香族複素環基を挙げることができる。 【0019】R', R'が置換もしくは無置換のアラル キル基である場合は、その好適な例として、ベンジル 基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1 -フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル 基、フェニルー t ープチル基、αーナフチルメチル基、 $1-\alpha-$ ナフチルエチル基、 $2-\alpha-$ ナフチルエチル 基、 $1-\alpha-$ ナフチルイソプロピル基、 $2-\alpha-$ ナフチ

フチルエチル基、2-β-ナフチルエチル基、1-β-ナフチルイソプロピル基、2-β-ナフチルイソプロピ ル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エ チル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル 基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m -クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-プロ モベンジル基、mープロモベンジル基、oープロモベン ジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル 基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル 基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジ 10 ル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、 oーアミノベンジル基、pーニトロベンジル基、mーニ トロベンジル基、o-ニトロペンジル基、p-シアノベ ンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル 基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1 -クロロ-2-フェニルイソプロピル基などの、その芳 香環部分はメチル基、塩素原子、臭素原子、沃素原子、 水酸基、アミノ基、ニトロ基またはシアノ基で置換され た、もしくは無置換の、ヘテロ原子として1個の窒素原 子を環中に含む場合もある、炭素原子数4ないし6の芳 20 香環であり、そのアルキル基部分は、水酸基または塩素 原子で置換されている場合もある、炭素原子数1ないし 4のアルキル基である、アラルキル基を挙げることがで

【0020】本発明の実施の形態で用いられる一般式 (1)で示されるカルボニルヒドロキシルアミン化合物 において、n価の金属イオンMに用いることのできる金属としてはアルミニウム、ベリリウム、ビスマス、カドミウム、セリウム、コバルト、銅、鉄、ガリウム、ゲルマニウム、水銀、インジウム、ランタン、マグネシウム、モリブデン、ニオブ、アンチモン、スカンジウム、スズ、タンタル、トリウム、チタニウム、ウラン、タングステン、ジルコニウム、バナジウム、亜鉛、銀、金、白金、クロム、マンガン、イットリウム、ニッケル、パラジウム、鉛、セレン、テルル、タリウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、ネオジウム、ユーロピウム、エルビウムが挙げられるがこれらに限られるものではない。

【0021】以下に、本発明の好適な実施の形態で用いられる一般式(1)で示されるカルボニルヒドロキシル 40 アミン化合物の例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0022]

【化3】

[0023]

[化4]

[0024]

【化5】

[0025]

【化6】

[0026]

【化7】

[0027]

50 【化8】

9 Qa (7)

[0028] 【化9】

[0029] [化10]

[0030]

【化11】

本発明における有機EL素子の素子構造は、電極間に有機層を1層あるいは2層以上積層した構造であり、その40例として、図1~4に示すように①陽極、発光層、陰極、②陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、③陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、あるいは④陽極、発光層、電子輸送層、陰極などの構造が挙げられる。本発明における化合物は上記のどの有機層に用いられてもよく、他の正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料にドープさせることも可能である。

【0031】本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限定されず、通常正孔輸送材として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、下記のピス(ジ

(p-h)ル)アミノフェニル)-1、1-シクロへキサン [01]、N、N'-ジフェニル-N、N'-ピス (3-メチルフェニル)-1、1'-ピフェニル-4、4'-ジアミン <math>[02]、N、N'-ジフェニル-N-N-ピス (1-ナフチル)-1、1'-ピフェニル)-4、4'-ジアミン <math>[03] などのトリフェニルジアミン類や、スターバースト型分子([04]~[06] など)などが挙げられる。

[0032]

10 【化12】

20

30

であれば何を使用してもよい。例えば、下記のピス(ジ 50 本発明に用いられる電子輸送材料は特に限定されず、通

常電子輸送材として使用されている化合物であれば何を 使用してもよい。例えば、下記の2-(4-ピフェニリ ル) -5- (4-t-プチルフェニル) -1, 3, 4-オキサジアゾール [07]、ピス {2-(4-t-ブチ

11

トリアゾール誘導体([09]、[10]など)、キノ リノール系の金属錯体([11]~[14]など)が挙 げられる。

[0033]

有機薄膜EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層に注入す る役割を担うものであり、4.5 e V以上の仕事関数を 有するものが効果的である。本発明に用いられる陽極材 50 用できる。また陰極としては、電子輸送帯または発光層

料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(IT O)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅などが適

に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ま しい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはイン ジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウムー インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、ア ルミニウムーリチウム合金、アルミニウムースカンジウ ムーリチウム合金、マグネシウムー銀合金などが使用で きる。

【0034】本発明の有機EL素子の各層の形成方法は 特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコー 本発明の有機EL素子に用いる、前記一般式(1)で示 される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分 子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に溶かした溶液の ディッピング法、スピンコーティング法、キャスティン グ法、バーコート法、ロールコート法などの塗布法によ る公知の方法で形成することができる。

【0035】本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は 特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホー ルなどの欠陥が生じ易く、逆に厚すぎると高い印加電圧 が必要となり効率が悪くなるため、通常は数 n m から 1 20 μmの範囲が好ましい。

[0036]

【実施例】以下、本発明を実施例をもとにさらに詳細に 説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の 実施例に限定されるものではない。

【0037】(合成例1)化合物(2)(トリス(N-ベンゾイル-N-フェニルヒドロキシルアミナート)ア ルミニウム)の合成

ソンセイルらの手法(インディアン・ジャーナル・オブ ケミストリー、セクションA、14A巻、6号、40 30 8~409頁、1976年参照) にしたがい、トリス (N-ベンゾイル-N-フェニルヒドロキシルアミナー ト)アルミニウムの合成を行った。N-ベンゾイル-N -フェニルヒドロキシルアミン8.53g(0.04モ ル)、アルミニウムトリイソプロポキシド2.04g (0.01モル)をベンゼン100mlに加え、還流さ せながら1時間攪拌を続けた。生成した固形物を濾取、 冷ペンゼン、石油エーテルで洗浄後、減圧乾燥を行い、 目的とするトリス(NーベンゾイルーN-フェニルヒド %) を得た。

【0038】(合成例2)化合物(3)(トリス(N-ベンゾイルーN-2-メチルフェニルヒドロキシルアミ ナート)アルミニウム)の合成

NーベンゾイルーNーフェニルヒドロキシルアミンの代 わりに、N-ベンゾイル-N-2-メチルフェニルヒド ロキシルアミンを用いる他は、合成例(1)と同様の手 法を用いて、トリス(N-ペンゾイル-N-2-メチル フェニルヒドロキシルアミナート) アルミニウムを得 た。

【0039】(合成例3)化合物(4)(トリス(N-シンナモイル-N-フェニルヒドロキシルアミナート) アルミニウム)の合成

N-ベンゾイル-N-フェニルヒドロキシルアミンの代 わりに、N-シンナモイル-N-フェニルヒドロキシル アミンを用いる他は、合成例(1)と同様の手法を用い て、トリス(N-シンナモイル-N-フェニルヒドロキ シルアミナート)アルミニウムを得た。

【0040】(合成例4)化合物(5)(トリス(N-ティング法などによる形成方法を用いることができる。 10 ベンゾイル-N-フェニルヒドロキシルアミナート)ガ リウム)の合成

> アルミニウムアルコキシドの代わりに、塩化ガリウム (III)水溶液を用いる他は合成例(1)と同様の手法を 用いて、トリス(NーペンゾイルーNーフェニルヒドロ キシルアミナート) ガリウムを得た。

> 【0041】(合成例5)化合物(6)(トリス(N-ベンゾイルーN-2-メチルフェニルヒドロキシルアミ ナート)ガリウム)の合成

アルミニウムアルコキシドの代わりに、塩化ガリウム (III)水溶液を用いる他は合成例 (2) と同様の手法を 用いて、トリス(N-ペンゾイル-N-2-メチルフェ ニルヒドロキシルアミナート)ガリウムを得た。

【0042】(合成例6)化合物(7)(トリス(N-シンナモイル-N-フェニルヒドキシルアミナート)ガ リウム)の合成

アルミニウムアルコキシドの代わりに、塩化ガリウム (III)水溶液を用いる他は合成例(3)と同様の手法を 用いて、トリス(N-シンナモイル-N-フェニルヒド ロキシルアミナート)ガリウムを得た。

【0043】(合成例7)化合物(8)(ピス(Nーベ ンゾイルーN-フェニルヒドロキシルアミナート) 亜 鉛) の合成

アルミニウムアルコキシドの代わりに、塩化亜鉛(II) 水溶液を用いる他は合成例(1)と同様の手法を用い て、ビス(N-ベンゾイル-N-フェニルヒドロキシル アミナート) 亜鉛を得た。

【0044】(合成例8)化合物(9)(ビス(N-ベ ンゾイルーN-2-メチルフェニルヒドロキシルアミナ ート)亜鉛)の合成

ロキシルアミナート)アルミニウム5.3g(収率80 40 アルミニウムアルコキシドの代わりに、塩化亜鉛(II) 水溶液を用いる他は合成例(2)と同様の手法を用い て、ピス(N-ベンゾイル-N-2-メチルフェニルヒ ドロキシルアミナート)亜鉛を得た。

> 【0045】(合成例9)化合物(10)(ビス(N-シンナモイル-N-フェニルヒドロキシルアミナート) 亜鉛)の合成

アルミニウムアルコキシドの代わりに、塩化亜鉛(II) 水溶液を用いる他は合成例(3)と同様の手法を用い て、ピス(N-シンナモイル-N-フェニルヒドロキシ 50 ルアミナート) 亜鉛を得た。

16

【0046】以下、一般式(1)の化合物を発光層(実 施例1~20)正孔輸送材料との混合薄膜を発光層(実 施例21~23)、電子輸送材料との混合薄膜を発光層 (実施例24~26)、正孔輸送層(実施例27~3 0)、および電子輸送層(実施例31~39)として用 いた例を示す。

【0047】 (実施例1) 実施例1に用いた素子の断面 構造を図1に示す。以下に本発明の実施例1に用いた有 機薄膜EL索子の作製手順について説明する。素子は陽 極/発光層/陰極により構成されている。ガラス基板1 10 上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20 Ω/口になるように製膜し、陽極2とした。その上に発 光層4として、化合物(2)を真空蒸着法にて40nm 形成した。次に陰極6としてマグネシウム-銀合金を真 空蒸着法にて200nm形成して有機EL素子を作製し た。この素子に直流電圧を5 V印加したところ、100 c d/m'の発光が得られた。

【0048】 (実施例2) 発光材料として、化合物 (3)を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加し 20 たところ、200cd/m'の発光が得られた。

【0049】(実施例3)発光材料として、化合物

(4)を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL索子を作製した。この索子に直流電圧を5V印加し たところ、250cd/m'の発光が得られた。

【0050】(実施例4)発光材料として、化合物

(5)を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL素子を作製した。この素子に直流電圧5V印加した ところ、200cd/m'の発光が得られた。

【0051】(実施例5)発光材料として、化合物

(6) を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加し たところ、300cd/m'の発光が得られた。

【0052】(実施例6)発光材料として、化合物

(7)を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加し たところ、380 c d/m'の発光が得られた。

【0053】(実施例7)発光材料として、化合物

(8) を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL索子を作製した。この索子に直流電圧を5V印加し 40 加したところ、1000cd/m゚の発光が得られた。 たところ、130cd/m'の発光が得られた。

【0054】(実施例8)発光材料として、化合物

(9) を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機 EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加し たところ、210cd/m'の発光が得られた。

【0055】 (実施例9) 発光材料として、化合物 (1 0)を用いた以外は実施例1と同様の操作を行い有機E L素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加した ところ、320cd/m²の発光が得られた。

【0056】(実施例10)ガラス基板1上にITOを 50 【0064】(実施例18)正孔輸送層3としてN,

スパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□になる ように製膜し、陽極2とした。その上に化合物(10) のクロロホルム溶液を用いたスピンコート法により40 nmの発光層4を形成した。次に陰極6としてマグネシ ウムー銀合金を真空蒸着法により200nm形成して有 機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加 したところ、120cd/m'の発光が得られた。

【0057】(実施例11)実施例11に用いた素子の 断面構造を図2に示す。素子は陽極/正孔輸送層/発光 層/電子輸送層/陰極により構成されている。ガラス基 板1上に I TOをスパッタリングによってシート抵抗が 20 Ω/□になるように製膜し、陽極2とした。その上 に正孔輸送層3として、N, N'ージフェニルーN, ェニル] -4, 4'-ジアミン[02]を真空蒸着法に て50nm形成した。次に発光層4として、化合物

(2) を真空蒸着法にて40 nm形成した。次に、電子 輸送層5として2-(4-ビフェニル)-5-(4-t ープチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール [07]を真空蒸着法にて20nm形成した。次に陰極 6としてマグネシウムー銀合金を真空蒸着法にて200 nm形成して有機EL素子を作製した。この素子に直流 電圧を10V印加したところ、950cd/m'の発光 が得られた。

【0058】 (実施例12) 発光材料として、化合物

(4) を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い有。 機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印 加したところ、1500cd/m の発光が得られた。

【0059】 (実施例13) 発光材料として、化合物 (5)を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い有

機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印 加したところ、1100cd/m'の発光が得られた。

【0060】 (実施例14) 発光材料として、化合物

(7)を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い有 機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印 加したところ、1900cd/m'の発光が得られた。

【0061】 (実施例15) 発光材料として、化合物

(8) を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い有 機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印

【0062】 (実施例16) 発光材料として、化合物

(9) を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い有 機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印 加したところ、1200cd/m'の発光が得られた。

【0063】(実施例17)発光材料として、化合物

(10) を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い 有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V 印加したところ、2200 c d/m² の発光が得られ

N'ージフェニルーN-N-ビス(1-ナフチル)-1, 1'-ピフェニル) -4, 4'-ジアミン[03] を、電子輸送層5としてピス{2-(4-t-プチルフ ェニル) -1, 3, 4-オキサジアゾール} -m-フェ ニレン [08] を用いた以外は実施例11と同様の操作 を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 10 V印加したところ、1500 c d/m の発光が得 られる。

【0065】(実施例19)正孔輸送層3として、スタ ーパースト型分子の化合物 [04]を、発光層4として 10 化合物(4)を、電子輸送層5としてキノリノール系の 金属錯体化合物 [11] を用いた以外は実施例11と同 様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直 流電圧を10V印加したところ、2000cd/m の 発光が得られた。

【0066】 (実施例20) 正孔輸送層3として、スタ ーバースト型分子の化合物 [05]を、発光層4として 化合物(7)を、電子輸送層5としてキノリノール系の 金属錯体化合物 [12] を用いた以外は実施例11と同 様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直 20 流電圧を10V印加したところ、2030cd/m²の 発光が得られた。

【0067】 (実施例21) 実施例21に用いた素子の 断面構造を図4に示す。素子は陽極/発光層/電子輸送 層/陰極により構成されている。ガラス基板1上にIT ○をスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□に なるように製膜し、陽極2とした。その上に発光層4と して、N, N'ージフェニル-N-N-ピス (1-ナフ チル) −1, 1'-ピフェニル) −4, 4'-ジアミン [03]と化合物(2)を1:10の重量比で共蒸着し 30 て作製した薄膜を50nm形成した。次いで電子輸送層 5としてトリアゾール誘導体の化合物 [09] を真空蒸 着法にて50 nm形成した。次に陰極6としてマグネシ ウムー銀合金を200nm形成してEL素子を作製し た。この素子に直流電圧を10V印加したところ、90 0 c d/m'の発光が得られた。

【0068】(実施例22)化合物(2)の代わりに化 合物(10)を用いた以外は実施例21と同様の操作を 行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を1 0 V印加したところ、1700 c d/m の発光が得ら 40 れた。

【0069】 (実施例23) ガラス基板1上にITOを スパッタリングによってシート抵抗が20Ω/口になる ように製膜し、陽極2とした。その上に化合物(10) とN, N'ージフェニルーNーNーピス(1ーナフチ ル) -1, 1'-ピフェニル) -4, 4'-ジアミン [03]をモル比で1:10の割合で含有するクロロホ ルム溶液を用いたスピンコート法により40nmの発光 層4を形成した。次にトリアゾール誘導体の化合物[1] 0] を真空蒸着法により50nmの電子輸送層5を形成 50 い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10

し、その上に陰極6としてマグネシウム-銀合金を真空 蒸着法により200mm形成して有機EL素子を作製し た。この素子に直流電圧を10V印加したところ、80 0 c d/m¹ の発光が得られた。

【0070】(実施例24)実施例24に用いた素子の 断面構造を図3に示す。素子は陽極/正孔輸送層/発光 層/陰極により構成されている。ガラス基板1上にIT ○をスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□に なるように製膜し、陽極2とした。その上に正孔輸送層 3としてN, N'ージフェニルーNーNーピス(1ーナ フチル) -1, 1'-ピフェニル) -4, 4'-ジアミ ン[03]を真空蒸着法にて50nm形成した。次に、 発光層4としてキノリノール系の金属錯体化合物[1 1] と化合物(2)とを20:1の重量比で真空共蒸着 した膜を50 nm形成した。次に陰極6としてマグネシ ウムー銀合金を200nm形成してEL素子を作製し た。この素子に直流電圧を10V印加したところ、14 00 c d/m' の発光が得られた。

【0071】(実施例25)発光層4としてキノリノー ル系の金属錯体化合物 [11] と化合物 (5) とを2 0:1の重量比で真空共蒸着した50nmの膜を用いた 以外は実施例24と同様の操作を行い有機EL素子を作 製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 2200cd/m¹ の発光が得られた。

【0072】 (実施例26) 正孔輸送層3としてN, N'ージフェニル-N-N'-ピス(3-メチルフェニ ル) - [1, 1'-ピフェニル] -4, 4'ージアミン [02]を、発光層4としてキノリノール系の金属錯体 化合物 [13] と化合物 (5) とを20:1の重量比で 真空共蒸着して作製した膜を用いた以外は実施例25と 同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に 直流電圧を10V印加したところ、1600cd/m² の発光が得られた。

【0073】 (実施例27) 正孔輸送層3として化合物 (2) を、発光層4としてキノリノール系の金属錯体化 合物 [13] を用いた以外は実施例11と同様の操作を 行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を1 0 V印加したところ、800cd/m²の発光が得られ た。

【0074】(実施例28)正孔輸送材料として、化合 物(4)を用いた以外は実施例27と同様の操作を行い 有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V 印加したところ、700cd/m²の発光が得られた。 【0075】(実施例29)正孔輸送材料として、化合 物(7)を用いた以外は実施例27と同様の操作を行い 有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V 印加したところ、780cd/m²の発光が得られた。 【0076】(実施例30)正孔輸送材料として、化合

物(10)を用いた以外は実施例18と同様の操作を行

V印加したところ、830cd/m の発光が得られた。

【0077】(実施例31)正孔輸送層3としてN, N'ージフェニルーNーNーピス(1ーナフチル)ー1, 1'ーピフェニル)ー4, 4'ージアミン[03]を、発光層4としてキノリノール系の金属錯体化合物[13]を、電子輸送層5として化合物(2)を用いた以外は実施例11と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1000cd/m'の発光が得られた。

【0078】(実施例32)電子輸送層5として、化合物(3)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、990cd/m¹の発光が得られた。

【0079】(実施例33)電子輸送層5として、化合物(4)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1100cd/m¹の発光が得られた。

【0080】(実施例34)電子輸送層5として、化合 20物(5)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1100cd/m¹の発光が得られた。

【0081】(実施例35)電子輸送層5として、化合物(6)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1000cd/m³の発光が得られた。

【0082】(実施例36)電子輸送層5として、化合 30 1 物(7)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い 2 有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V 3 印加したところ、1500cd/m²の発光が得られ 4 た。 5

【0083】(実施例37)電子輸送層5として、化合物(8)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い

有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V 印加したところ、 $1200cd/m^2$ の発光が得られた。

【0084】(実施例38)電子輸送層5として、化合物(9)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1100cd/m¹の発光が得られた。

【0085】(実施例39)電子輸送層5として、化合物(10)を用いた以外は実施例31と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10 V印加したところ、2000cd/m¹の発光が得られた。

[0086]

【発明の効果】以上説明したとおり、本発明においては、一般式(1)で示されるカルボニルヒドロキシルアミン化合物を有機EL素子の構成材料とすることにより、従来に比べて高輝度な発光が得られ、本発明の効果は大である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL素子の構造例を示す模式断面 図である。

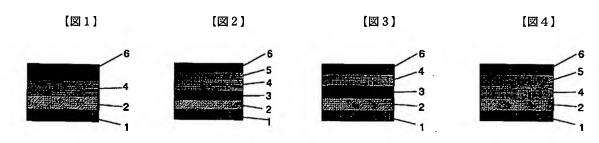
【図2】本発明の有機EL素子の構造例を示す模式断面 図である。

【図3】本発明の有機EL素子の構造例を示す模式断面図である。

【図4】本発明の有機EL素子の構造例を示す模式断面図である。

【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 陰極



THIS PAGE BLANK (USPTO)